



# 中华人民共和国国家知识产权局

100083 北京市海淀区王庄路1号清华同方科技大厦B座25层 中科专利商标代理有限责任公司 柳春琦	发文日
申请号: 028020235	
申请人: 波兰商艾蒙诺公司, 日亚化学工业株式会社	
发明名称: 获得整体单晶性含镓氮化物的方法及装置	



## 第 2 次 审查 意见 通知书

1. ☒ 审查员已收到申请人于2006年5月19日提交的意见陈述书,在此基础上审查员对上述专利申请继续进行实质审查。

☐ 根据国家知识产权局专利复审委员会于 年 月 日作出的复审决定,审查员对上述专利申请继续实质审查。

☐

2. ☐ 申请人于 年 月 日提交的修改文件,不符合专利法实施细则第51条第3款的规定。

3. 继续审查是针对下述申请文件进行的:

☐ 上述意见陈述书中所附的经修改的申请文件。

☒ 前次审查意见通知书所针对的申请文件以及上述意见陈述书中所附的经修改的申请文件替换页。

☐ 前次审查意见通知书所针对的申请文件。

☐ 上述复审决定所确定的申请文件。

☐

4. ☒ 本通知书未引用新的对比文件。

☒ 本通知书引用下述对比文件(其编号续前,并在今后的审查过程中继续沿用):

编号	文件号或名称	公开日期(或抵触申请的申请日)
----	--------	-----------------

2	Journal of Crystal Growth 166,	1996-12-31
---	--------------------------------	------------

1996, 583-589

3	CN1036414A	1989-10-18
---	------------	------------

5. 审查的结论性意见:

☒ 关于说明书:

☐ 申请的内容属于专利法第5条规定的不授予专利权的范围。

☐ 说明书不符合专利法第26条第3款的规定。

☐ 说明书的修改不符合专利法第33条的规定。

☒ 说明书的撰写不符合专利法实施细则第18条的规定。

☐

☒ 关于权利要求书:

☒ 权利要求 37-56 不具备专利法第22条第2款规定的新颖性。

☐ 权利要求 不具备专利法第22条第3款规定的创造性。

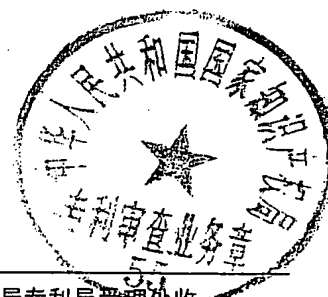
☐ 权利要求 不具备专利法第22条第4款规定的实用性。

☐ 权利要求 属于专利法第25条规定的不授予专利权的范围。

☐ 权利要求 不符合专利法第26条第4款的规定。

☐ 权利要求 不符合专利法第31条第1款的规定。

☒ 权利要求 1、31 的修改不符合专利法第33条的规定。



21303  
2006.7



回函请寄: 100088 北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 国家知识产权局专利局受理处收  
(注: 凡寄给审查员个人的信函不具有法律效力)

- ☐ 权利要求 不符合专利法实施细则第 2 条第 1 款的规定。  
☐ 权利要求 不符合专利法实施细则第 13 条第 1 款的规定。  
☒ 权利要求 57 不符合专利法实施细则第 20 条的规定。  
☐ 权利要求 不符合专利法实施细则第 21 条的规定。  
☒ 权利要求 31 不符合专利法实施细则第 22 条的规定。  
☐ 权利要求 不符合专利法实施细则第 23 条的规定。

☐ 分案的申请不符合专利法实施细则第 43 条第 1 款的规定。

上述结论性意见的具体分析见本通知书的正文部分。

6. 基于上述结论性意见, 审查员认为:

- ☒ 申请人应按照通知书正文部分提出的要求, 对申请文件进行修改。  
☐ 申请人应在意见陈述书中论述其专利申请可以被授予专利权的理由, 并对通知书正文部分中指出的不符合规定之处进行修改, 否则将不能授予专利权。  
☐ 专利申请中没有可以被授予专利权的实质性内容, 如果申请人没有陈述理由或者陈述理由不充分, 其申请将被驳回。

7. 申请人应注意下述事项:

- (1) 根据专利法第 37 条的规定, 申请人应在收到本通知书之日起的贰个月内陈述意见, 如果申请人无正当理由逾期不答复, 其申请将被视为撤回。  
(2) 申请人对其申请的修改应符合专利法第 33 条和实施细则第 51 条的规定, 修改文本应一式两份, 其格式应符合审查指南的有关规定。  
(3) 申请人的意见陈述书和/或修改文本应邮寄或递交国家知识产权局专利局受理处, 凡未邮寄或递交给受理处的文件不具备法律效力。  
(4) 未经预约, 申请人和/或代理人不得前来国家知识产权局专利局与审查员举行会晤。

8. 本通知书正文部分共有 2 页, 并附有下列附件:

- ☒ 引用的对比文件的复印件共 2 份 13 页。

☐



审查员: 刘静晓(8711)

审查部门 化学发明审查部

2007 年 3 月 23 日

21303  
2006.7



回函请寄: 100088 北京市海淀区蓟门桥西土城路 6 号 国家知识产权局专利局受理处收  
(注: 凡寄给审查员个人的信函不具有法律效力)



## 第二次审查意见通知书正文

申请号：028020235

申请人于2006年5月19日提交了意见陈述书和经过修改的申请文件，审查员在阅读了上述文件后，对本案继续进行审查，再次提出如下审查意见。

1. 申请人根据第一次审查意见通知书对权利要求书和说明书进行了修改。经审查，新提交的修改文件中将申请人将原始权利要求1的“第一个压力”、“第二个压力”，原始权利要求31中的“在溶解压力下”、“完全”、“以及结晶化作用晶种仍然保持基本上不溶解”、“第一个压力”、“第二个压力”删除了，扩大了权利要求1和31的保护范围，并且“第一个压力”、“第二个压力”是说明书记载的技术方案中非常重要的因素（在本申请说明书中的全部技术方案中压力和温度是同时考虑的），故上述内容的删除属于不允许的修改，不符合专利法第三十三条的规定（参见审查指南第二部分第八章第5.2.2和5.2.3.3节）。申请人应当重新提交符合专利法上述规定的修改文件，以便克服申请文件中存在的缺陷。如果申请人不能在本通知书指定的答复期限内提出有说服力的反对理由，同时又坚持上述不允许的修改，则本申请将被驳回。

2. 权利要求37请求保护的含镓氮化物结晶体不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。本申请中没有公开可与对比文件的晶体进行比较的参数以证明该晶体的不同，而仅仅是制备方法不同，也没有表明由于制备方法上的区别以及权利要求中记载的温度系数特征为产品带来任何功能、性质上的改变，因此推定该方法表征的产品权利要求不具备新颖性。

3. 权利要求38请求保护的含镓氮化物结晶体不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。该权利要求使用了晶体的表面积和含镓氮化物溶解度的温度系数对晶体进行限定，但是对于本领域的技术人员来说他们熟知确定一种新晶体的充要条件是晶体的组成（掺杂）和晶格结构，由于晶体的表面积和温度系数特征并不能确定一种新晶体，在评述晶体新颖性时审查员不予考虑。而对比文件2（Journal of Crystal Growth 166, 1996, 583-589）公开了高压生长的Ga<sub>0.9</sub>N晶体具有约 $10^5\text{cm}^{-2}$ 的位错密度（参见对比文件2第587页左栏倒数第7-4行）。因此权利要求38请求保护的含镓氮化物结晶体相对于对比文件2不具备新颖性。

4. 权利要求39也请求保护一种含镓氮化物结晶体，基于与审查意见2相同的理由，权利要求39不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。



5. 同理, 权利要求40、41、44、48、49不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。权利要求42、43、45、46、47对含镓氮化物晶体作了进一步限定: 晶体含有其他元素, 由于仅记载了掺杂, 未记载晶格结构, 因此不能确定为新晶体, 故权利要求42、43、45、46、47不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。

6. 权利要求50请求保护一种获得含镓氮化物的装置, 而对比文件3 (CN1036414A) 公开了相同的装置: 高压釜中间有一适宜开孔率的挡板, 釜腔内填充矿化剂溶液, 釜腔上、下部的加热器分别用温控仪控温, 使溶解区与生长区之间保持一定的温差 (参见对比文件3的权利要求1、说明书第1页最后1段)。权利要求50中记载的“其中含镓氮化物的溶解度的温度系数是负的”对请求保护的装置并未起到任何限定作用, 而对比文件3公开了相同的适用于水热法生长晶体的生长装置, 因此权利要求50不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。

7. 权利要求51-56请求保护的技术方案也在对比文件3中公开了, 故权利要求51-56不具备专利法第二十二条第二款规定的新颖性。

8. 独立权利要求31和独立权利要求1所涉及的是同一项发明, 撰写成两个独立权利要求不符合专利法实施细则第二十二条第三款的有关规定。从内容上看, 在后独立权利要求包含了在前独立权利要求的全部技术特征, 只是对在前独立权利要求的进一步限定, 因此应当将后者改为引用前者的从属权利要求。

权利要求57与权利要求1从文字描述上来看虽然不相同, 但它们是两项保护范围实质相同的同类权利要求, 因此, 不符合专利法实施细则第二十条第一款有关权利要求应当简明的规定 (参见审查指南第二部分第二章第3.2.3节)。申请人应将权利要求57删去。

9. 说明书第12页第7行记载的“优选第一个温度高于第二个温度”与说明书中多处记载的“第二个温度高于第一个温度”相矛盾, 导致说明书不清楚, 不符合专利法实施细则第十八条第三款的规定。申请人应当对说明书进行修改。

基于以上理由, 申请人应当删除请求保护晶体和装置的权利要求, 并对按照本通知书提出的审查意见对申请文件进行修改, 克服所存在的缺陷, 则本申请可望被授予专利权。对申请文件的修改应当符合专利法第三十三条的规定, 不得超出原说明书和权利要求书记载的范围。

审查员: 刘晓静 代码: 8711

[\[Patent Search\]](#)

Title: Method of growing KTP monocrystals by means of modified mineralizing agent and its product			
Application Number:	88108867	Application Date:	1988.12.30
Publication Number:	1036414	Publication Date:	1989.10.18
Approval Pub. Date:		Granted Pub. Date:	
International Classifi-cation:	C30B7/10, C30B29/14		
Applicant(s) Name:	Inst. of Physics, Chinese Academy of Sciences		
Address:			
Inventor(s) Name:	Jia Shouquan		
Attorney & Agent:	GAO CUNXIU		
Abstract			
The technology of this invention falls into the category of preparation of non-linear optical crystalline materials: This invention concerns a modified mineralizing agent which is applied to the hydrothermal method for growing KTP monocrystals. The said mineralizing agent, which is favorable to lowering of both the temp. and the pressure necessary for the growth of KTP monocrystals, makes it possible to produce on domestically made equipment practical ly transparent and colorless KTP monocrystals as large as 7x15x17 mm <sup>3</sup> .			

Close

D3



# [12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 88108867.6

[51] Int. Cl.

C30B 7/10

43] 公开日 1989年10月18日

[22] 申请日 88.12.30

[71] 申请人 中国科学院物理研究所

地址 北京市 603 信箱

[72] 发明人 贾寿泉 牛宏达

[74] 专利代理机构 中国科学院物理研究所专利办公室

代理人 高存秀

C30B 29/22

说明书页数: 3

附图页数: 1

[54] 发明名称 利用改进的矿化剂生长 KTP 单晶的方法及其产品

## [57] 摘要

本发明属于非线性光学晶体材料的制备方法领域。本发明着重提供一种改进的矿化剂,把之中矿化剂应用到水热法中生长 KTP 单晶,降低了水热法生长 KTP 单晶的温度、压力,从而有利于 KTP 晶体生长,使之在国内的设备上边易获得实用的大颗粒的无色、透明 KTP 单晶,其晶体尺寸达  $7 \times 15 \times 17 \text{mm}^3$ 。

1、一种在高压釜底装有 $\text{KTiOPo}_4$ 晶体，高压釜上部悬挂籽晶，其高压釜中间有一适宜开孔率的档板，腔内填充矿化剂溶液，釜腔上、下部的加热器分别用控温仪控温，使溶解区与生长区之间保持一定的温差的水热法生长KTP单晶的方法，其特征在于，所用的矿化剂为 $\text{KF} + \text{H}_2\text{O}_2$ 水溶液，所述的中温中压是在生长区温度为 $360^\circ\text{C} - 420^\circ\text{C}$ ，溶解区温度为 $370^\circ\text{C} - 450^\circ\text{C}$ ，生长区与溶解区 $10 - 30^\circ\text{C}$ 的温差生长30—60天，然后以每小时 $0.5 - 20^\circ\text{C}$ 的速率降至室温。

2、按照权利要求1所述利用改进矿化剂的水热法生长KTP单晶的方法，其特征在于，所用的矿化剂水溶液配比为1—3M的 $\text{KF}$ ，1—5wt%的 $\text{H}_2\text{O}_2$ ，水溶液充满度为70%。

3、按照权利要求1所述的利用改进矿化剂的水热法生长KTP单晶方法，其特征在于所用原料是光谱纯，分析纯的。

4、一种按上述各项权利要求所述的利用改进矿化剂的水热法生长KTP单晶的方法所制备无色透明的大尺寸KTP单晶。

## 利用改进的矿化剂生长磷酸钛氧钾单晶及其方法

本发明属于非线性光学晶体材料及其制备领域

目前世界上仅有美国Airtron实验室用水热法生长出了可供实用的非线性光学晶体磷酸钛氧钾( $\text{KTiOPO}_4$ , 以下简称KTP晶体)。由于他们采用的生长温度为 $600^\circ\text{C}$ 左右, 压力为1800大气压, 这样的生长条件对水热法来说是相当苛刻的, 一般生长晶体所用的水热装置难以承受。该实验室是用高温合金特制成一种生长装置的, 而这种高温合金价格昂贵, 在美国列为禁运出口的材料, 而且加工困难, 容量也受限制。因此不利于推广生产和降低成本。Bell实验室虽然用 $\text{K}_2\text{HPO}_4 + \text{KPO}_3$ 作为矿化剂而降低了生长KTP的温度与压力, 但他们所得的晶体一般质量不高, 生长率和尺寸不大。特别要指出的是, 上述两家实验室研制的KTP晶体都带有浅黄绿色。

参考文献:

- (1) Air Force Contract No. F33615-78-(-1523)
- (2) V. S. Pat. No. 4, 654, 111

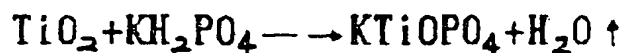
本发明的目的在于克服上述的缺点, 提供一种采用改进的矿化剂能够在中温中压的水热条件下生长KTP单晶的方法, 从而可降低对设备的要求, 可在一般合金钢甚或低碳钢容器能承受的较低温度与压力下, 用水热法生长出无色透明的优质大尺寸KTP单晶。

为了达到上述目的, 本发明是通过以下技术和步骤来实现的, 水热法生长晶体首先是必须在水热生长装置里进行。生长装置是由加热炉、高压釜和精密控温系统组成的, 其中高压釜是关键部分, 其材料为普通合金钢, 也可用低碳钢制造。为了便于封装与开启, 并以贵金属衬里防止侵蚀釜壁, 高压釜选用了冷锥座封闭型的密封结构。特别要指出的是, 采用衬里时不存在衬囊所具有的各种缺点, 例如必须调



节囊内外的压力平衡，不易控制溶解区与生长区的温差以及加工操作麻烦，不能重复使用等。

第二，KTP晶料的制备：KTP晶料是用降温熔盐法通过自发结晶过程制备的。合成KTP的反应式为：



所用的高温溶剂是由过量的 $\text{KH}_2\text{PO}_4$ 和一定比例的 $\text{K}_2\text{HPO}_4$ 加热合成混合物 $\text{KnPn-2O}_{3n-5}$ ，其中 $n=4-8$ 。把与溶液计算浓度当量的 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{KH}_2\text{PO}_4$ 和 $\text{K}_2\text{HPO}_4$ 混合物分批装入铂金坩埚内，置 $500^\circ\text{C} \sim 700^\circ\text{C}$ 加热脱水。然后继续加热至 $1050^\circ\text{C}$ ，缓慢冷却到室温，其降温速率为 $2^\circ\text{C} - 20^\circ\text{C}/\text{小时}$ 。再用热水冲洗去多磷酸钾溶剂和部分粉状KTP即获纯KTP晶料。

第三，配制矿化剂水溶液，水热法中应用的矿化剂又名助溶剂，其主要作用是在水热溶液中与结晶物质形成结构松散的可溶性络合物，以提高结晶物质在水中的溶解度，满足晶体从水热溶液中生长的要求。选择矿化剂的标准有如下几条：

(1) 结晶物质在其水溶液中要有足够大的水热溶解度和溶解度温度系数，以便达到有实际意义的生长率。

(2) 在这样的水热体系中，结晶物质是唯一的稳定固相；从而不会影响体系的物相关系。

(3) 其水溶液的粘度小，有利于晶体溶质与矿化剂形成的生长基元进行输运扩散和脱溶剂化过程。

(4) 容易得到价格低、纯度高的产品。

(5) 毒性低，不容易腐蚀容器内壁或衬里。我们所用的矿化剂溶液为 $\text{KF} + \text{H}_2\text{O}_2$ 的水溶液， $\text{KF}$ 的浓度为 $1-3\text{m}$ ， $\text{H}_2\text{O}_2$ 的浓度为 $1-5\text{wt}\%$ 。本发明所提供的这种矿化剂基本具备了以上各点要求。使用这种矿化剂的作用是在较前人为低的温度( $350-450^\circ\text{C}$ )和压力( $700-1300\text{kg}/\text{cm}^2$ )范围内获得足够大的KTP溶解度及其温度系数，满足温差法生长KTP晶体的需要，并可在较大的用普通合金钢或低碳钢制釜中生长品质优良的KTP大单晶。

本发明的工艺流程结合实施例加以说明，以  $\text{f}_a 28$  釜为例，称量  $\text{TiO}_2$  40g,  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  160g,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$  60g, 光谱纯，配成KTP晶料60g。将KTP晶料60g装在盖有适宜开孔率挡板(3)的铂料斗[4]中作为培养料[5]，料斗[4]置于高压釜腔[1]的底部，上部放入悬挂籽晶[6]的铂金属架[7]，高压釜腔内注入70%充满度的矿化剂水溶液，然后用塞头[8]加釜帽[9]密封。两组带状加热箍分别固定于釜体外壁相应于溶解区(釜的下部)和生长区(釜的上部)的位置上，并通过两台DWK—702精密温度控制仪控制温度。以每小时 $30^\circ\text{C}—50^\circ\text{C}$ 的速率升温至所需生长温度 $360^\circ\text{C}—420^\circ\text{C}$ ，也就是生长区的温度和溶解温度 $370^\circ\text{C}—450^\circ\text{C}$ ，也就是溶解区的温度，维持 $10—30^\circ\text{C}$ 的温差成长30—60天，然后以每小时 $0.5—20^\circ\text{C}$ 的速率降至室温，这样便能得到大尺寸为 $17 \times 15 \times 7\text{mm}$ 的透明单晶体。

本发明所提供的改变矿化剂的组分及粘度来改进水热法生长KTP单晶的方法，其优点是可在国内的装置上用水热法生长出实用的大颗粒KTP单晶，并且该晶体无色透明，可用于非线性光学做激光倍频、电光等方面。

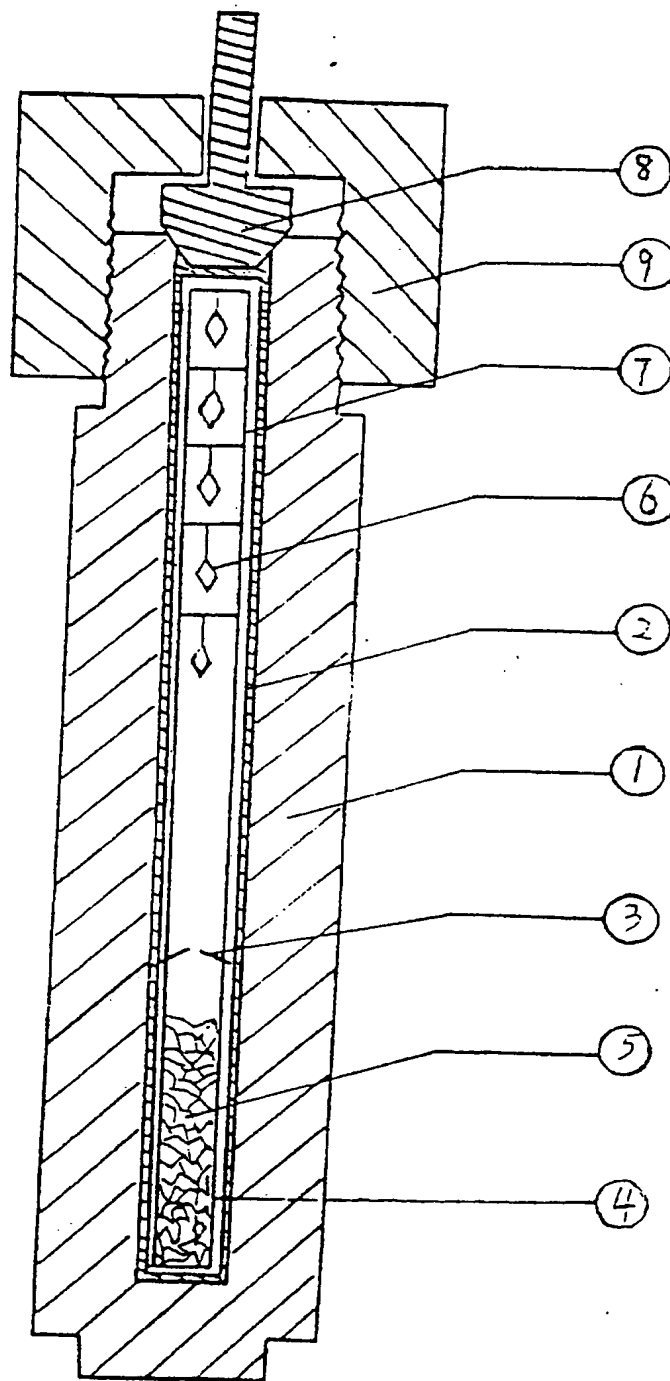


图 1.